

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 62-216733

(43)Date of publication of application : 24.09.1987

(51)Int.Cl. B29C 65/52
B29D 9/00
B32B 15/08
C08J 5/12

(21)Application number : 61-061571

(71)Applicant : HITACHI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 19.03.1986

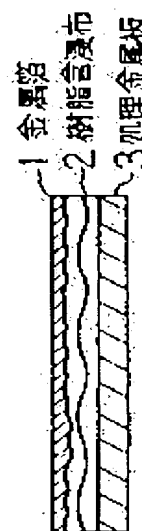
(72)Inventor : IIJIMA TOSHIYUKI
MIZUNO YUTAKA
YOKOZAWA SHUNYA
FUJIOKA ATSUSHI

(54) PREPARATION OF METAL COMPOSITE LAMINATE

(57)Abstract:

PURPOSE: To produce a metal composite laminate with high adhesive strength of a metal foil by laminating and adhering a metal foil with a resin or a resin composition as an interlayer to a surface of a metal plate on which a specific treatment has been carried out.

CONSTITUTION: After cleaning and roughening and activating a surface of a metal plate 3 by a chemical treatment and providing the surface with chemical bonding strength to a resin by a coupling agent treatment, a metal foil 1 is laminated and adhered to the surface with a resin or a resin combination 2 interlaid. It is desirable that acid, alkaline or any reagents accomplishing a chemical reaction should be used in the chemical treatment, while a silane or a titanium coupling agent can be used as a coupling agent. As regards the resin, thermoplastics such as vinyl chloride resin, methacryl resin, polycarbonate, etc. or a heat-curable resin such as phenol, silicone, polyimide, etc., and a combination of more than two kinds of them or a combination of these resins with a base material should be used.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

⑫ 公開特許公報(A)

昭62-216733

⑪ Int.Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 昭和62年(1987)9月24日

B 29 C 65/52

7365-4F

B 29 D 9/00

6660-4F

B 32 B 15/08

K-2121-4F

C 08 J 5/12

7258-4F

審査請求 未請求 発明の数 1 (全3頁)

⑭ 発明の名称 金属複合積層体の製造方法

⑮ 特 願 昭61-61571

⑯ 出 願 昭61(1986)3月19日

⑰ 発 明 者 飯 島 利 行 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館工場内

⑱ 発 明 者 水 野 裕 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館工場内

⑲ 発 明 者 横 沢 舜 哉 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館工場内

⑳ 発 明 者 藤 岡 厚 下館市大字小川1500番地 日立化成工業株式会社下館研究所内

㉑ 出 願 人 日立化成工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

㉒ 代 理 人 弁理士 廣 瀬 章

明 細 書

1. 発明の名称

金属複合積層体の製造方法

2. 特許請求の範囲

1. 化学的処理に続いてカップリング剤処理を施した金属板表面に、樹脂または樹脂組成物を介して金属箔を積層接合することを特徴とする金属複合積層体の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、金属箔の接合強度が大きい金属複合積層体の製造方法に関する。

(従来の技術)

電気絶縁基板用の金属複合積層体の製造については、金属板表面を機械的に粗化し或いはアルカリ処理、クロム酸処理等の化学的処理によって活性化した後、樹脂または樹脂含有紙布を介して金属箔を積層する方法が従来報告されている(特公昭54-31519、特開昭59-148391、特公昭55-12754、電

電公社電気通信研究実用化報告vol18 No 12-1969など)。

(発明が解決しようとする問題点)

これら従来の製造方法には種々の問題点がある。金属板表面を機械的に研磨して粗化する場合、粗さ程度を均等にすることが難しい。粗さが過大になると、熱時の接着力が劣りかつ研磨時の研磨粉を除くことが難しいから、この粉が接着に悪影響を与える等の問題が起きやすい。また、化学的処理の例では、アルカリ処理またはクロム酸処理だけでは衝撃、熱時の接着力が劣るという欠点がある。従来技術による積層体を電気絶縁基板として用いた場合、部品搭載時にハンダを用いることが常であるが、その熱に耐えることができず膨れや剥がれを起こすことがある。すなわち、化学的処理のみではハンダ処理に対して十分耐えない欠点がある。

(問題点を解決するための手段)

本発明者が以上説明した従来技術の問題点を解決するために本発明を得た。

本発明は、金属板表面を化学的処理によって洗浄または粗化して活性化し、さらにカップリング剤処理を行って樹脂との化学的結合力を与えた後、樹脂または樹脂組成物を介して金属箔を積層接着することを特徴とする金属複合積層体の製造方法である。

金属板は、アルミニウム、鉄、銅、ニッケル、亜鉛、銀、錫等またはそれらの合金等を用いることができる。化学処理は、酸、アルカリその他金属に対して化学反応をおこすもの、好ましくは酸、さらに好ましくは極く薄い酸化膜を形成することができる硫酸を用いると良い。カップリング剤は、シランカップリング剤、チタンカップリング剤が好ましく、その例を次に挙げる。ビニルトリクロロシラン、ビニルトリス(βメトキシエトキシ)シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、β-(3Aエポキシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピル

トリメトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-クロロプロピルトリメトキシシラン等の他イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホンチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルバイロホスフェート)チタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト)チタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、テトラ(2,2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル)ビス(ジトリデシル)ホスファイトチタネート、ビス(ジオクチルバイロホスフェート)エチレンチタネート等で処理する。樹脂は、塩化ビニル樹脂、メタクリル樹脂、スチロール樹脂、ポリアミド樹脂、

ポリエチレン、フッ素樹脂、ポリプロピレン、ポリアセタール、ポリカーボネート等の熱可塑性のものと、フェノール、尿素、メラミン、ポリウレタン、不飽和ポリエステル、シリコン、エポキシ、ジアリルフタレート、ポリイミド等の熱硬化性樹脂及びその2種以上を組合わせたものを用いる。これらの樹脂を次に述べる基材と組合わせるか、または樹脂のみで用いる。基材は、セルロース、ガラス繊維、炭素繊維、ポリアミド繊維等の織布、不織布、粉末等を用いることが好ましく、金属酸化物等の充填剤を混合して用いても良い。

上記の化学的処理及びカップリング剤処理を行った金属板、樹脂組成物及び銅箔、アルミ箔等の金属箔と積層し、加熱加圧して積層一体化する。すなわち、化学的処理に続いてカップリング剤処理を行った金属板表面の一方或いは双方の接層面に前記樹脂及び樹脂組成物を予め積層、塗布などした該金属箔を合わせ、または金属箔に予め前記の樹脂及び樹脂組成物を積層、

塗布などした後化学的処理及びカップリング剤処理を行った金属板表面を合わせて加熱加圧し積層一体化する。

実施例1

厚さ1.0mmのアルミニウム板(J1S-H-1050)を50℃の6NH₂SO₄処理液に10分間浸漬した後、十分に水洗乾燥する。さらに、カップリング剤としてN-フェニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン(信越化学製KBM573)を5%溶解した液に浸漬した後、120℃で10分間乾燥した。次いで、ポリイミド樹脂を50μm厚のガラスクロスに含浸させて加熱半硬化させた樹脂含浸布(プリプレグ)を、前記処理金属板と35μm厚の片面粗化銅箔との間に挟んで構成し、常法に従って加熱加圧して積層体を得た。図1はその断面図を示す。

実施例2

実施例1と同じ銅箔に同じ樹脂を塗布し加熱して半硬化の状態とする。実施例1と同じ処理をしたアルミニウム板に樹脂塗布銅箔を重ね、

加熱加圧して積層体を得た。図2はその断面図を示す。

実施例3

エポキシ樹脂を50 μ m厚のガラスクロスに含浸させ、加熱半硬化してプリプレグを得た。このプリプレグを用いて、他は実施例1と同様にして積層体を得た。

比較例1

厚さ1.0mmのアルミニウム板(JIS H 1050)の表面を50℃の6NH₂SO₄処理液に10分間浸漬した後、十分に水洗乾燥させる。このアルミニウム板と実施例1と同じプリプレグ及び銅箔を用いて構成し、常法に従って加熱加圧して積層体を得た。

比較例2

実施例1と同じ銅箔に同じポリイミド樹脂を塗布して加熱半硬化後、比較例1と同じアルミニウム板に重ねて加熱加圧して積層体を得た。

比較例3

厚さ1.0mmのアルミニウム板(JIS H

1050)の表面をロールブラシで機械的に粗化し、このアルミニウム板を用いて実施例1と同じプリプレグ及び銅箔を用いて、加熱加圧して積層体を得た。

(発明の効果)

各実施例、各比較例によって得た積層体のハンダ耐熱性試験及び銅箔引き剥がし強度試験の測定値を表1に示す。表1によって明らかなように、ハンダ耐熱性については、カップリング剤処理を行ったものが優れている。特に、樹脂コーティングの絶縁層を有する実施例2と比較例2とを比べると分かる通り、カップリング剤処理を行ったものは高温時に高い接着力を示す。

表 1

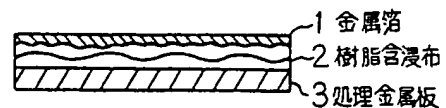
項 目 \ 試 料	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3
ハンダ耐熱性 (300℃での時間[秒])	180	180	60	30	25	45
銅箔引き剥がし	室温	A1.78	B1.95	A1.98	A1.76	A1.76
強度(kgf/cm)	150℃	A1.65	B1.76	A1.35	A1.66	C0.75

注) 表中 { Aは銅箔-樹脂界面剥離
Bは樹脂中剥離
Cは樹脂-アルミ界面剥離

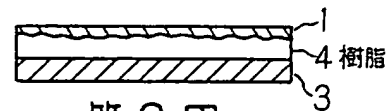
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の実施例において樹脂含浸布を用いた金属複合積層体の断面図、第2図は樹脂コーティングによる積層体、第3図は金属板両面に樹脂含浸布を介して金属箔を接合した積層体の断面図である。以上の3図は本発明実施例の一部である。

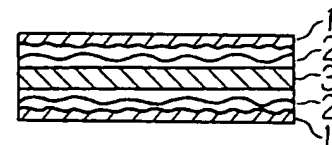
- 1 …… 金属箔、 2 …… 樹脂含浸布
3 …… 処理金属板、 4 …… 樹脂。



第1図



第2図



第3図

代理人弁理士 廣 瀬 章